

## **Procédé et Appareillage pour Modifier la Probabilité de Désexcitation des Nucléides Isomères.**

### **DESCRIPTION**

#### **Domaine technique:**

La présente invention concerne un procédé et un appareillage pour modifier la probabilité de désexcitation des nucléides isomères.

La probabilité de désexcitation d'un corps radioactif est reliée à la demi-vie, c'est à dire  
5 le temps nécessaire à la désexcitation de la moitié des noyaux radioactifs. Cette probabilité est donnée la formule :

$$P = \text{LN}(2)/\lambda$$

P, probabilité de désexcitation par minutes ;

LN, logarithme naturel ;

10  $\lambda$ , demi-vie en minutes.

Par exemple, la demi-vie de l'indium  $115^m$  normal est de 268 minutes. La probabilité de désexcitation d'un noyau par minutes est donc de 0,00258 ce qui représente une chance sur 387 par minute. Par indium  $115^m$  normal, on désigne l'isomère excité classiquement et non comme stipulé dans cette invention.

15 Il existe de nombreux nucléides qui possèdent un état métastable (isomères) dont la demi-vie va, selon les isomères, de une microseconde ou moins à 50 ans ou plus. Une liste des principaux isomères est donnée dans le tableau 1. Dans cette table sont listés le symbole, l'abondance de l'isotope, la demi-vie des noyaux et l'énergie de la radiation gamma émise lors de la désexcitation. L'indium 115 par exemple possède un état mé-  
20 tastable de 268 minutes (4,48 heures) de demi-vie comme le montre la figure 1. Il retourne à son état fondamental stable par transition isomérique en émettant un rayonnement gamma de 336,2 keV. La transition isomérique, comme la conversion interne, ne donne pas lieu à un changement de numéro atomique. Dans son état normal, un isomère retourne à son état fondamental avec la demi-vie mentionnée dans le ta-  
25 bleau 1. Certains noyaux isomères, comme Hafnium 178 ou Hafnium 179, émettent plusieurs gamma lors de leur retour à l'état fondamental. Il existe également de nombreux isotopes radioactifs avec un état métastable qui peuvent être utilisés dans des

applications de l'invention.

L'invention, dont la mise en œuvre est décrite dans la suite, exploite des propriétés anticipées par la Mécanique Quantique selon lesquelles deux ou plusieurs particules intriquées conservent une liaison quantique lorsqu'elles sont séparées par une distance  
5 quelconque, liaison quantique qui est instantanée dans le même référentiel. Selon ces propriétés, la désexcitation de l'une des particules provoquerait la désexcitation de l'autre ou des autres. Ces propriétés jusqu'à maintenant mises en œuvre avec des particules microscopiques, viennent d'être mises en œuvre avec des systèmes macroscopiques.

10 Les références suivantes de la littérature sont citées ci-dessous :

[1.] Einstein A., Podolsky B., Rosen N., Phys. Rev. 47, 777, (1935)

[2.] Collins C.B., *Proceedings of the First International Induced Gamma Emission Workshop IGE '97*, edited by I.I. Popescu and C.A. Ur (IGE Foundation, Bucharest, Romania, 1999), pp. 1-17.Ch.

15 [3.] Silberhorn, et al. Physical Review Letters, 86, 19, pp. 4267-4270, 7 May 2001.

[4.] Ikoro N.C., Johnson D.A., and Antich P.P., Med. Phys. 14, 93, 1987.

[5.] Natto S.S.A, Journal of Australian Physical & Engineering Sciences in Medecine, 26, 3, pp 78-82, 2003.

[6.] Bertlmann R. A., and Zeilinger A., (eds) «*Quantum [Un]speakables, from Bell to Quantum Information*», Springer-Verlag Heidelberg, 2002.

20 [7.] Julsgaard B., Kozhekin A., and Polzik E. S., «Experimental long-lived entanglement of two macroscopic objects», Nature, 413, 400-403, (2001).

#### **Technique antérieure:**

25 Les corps radioactifs ont une demi-vie rigoureusement constante dans les limites des fluctuations statistiques. Hors le cas des isomères irradiés selon les méthodes décrites dans la présente invention ou la stimulation avec des rayons X ou gamma sur des noyaux isomères excités, il est impossible de faire varier la demi-vie d'un isomère radioactif.

#### **Exposé de l'invention :**

30 L'invention fait usage de rayons gamma intriqués pour exciter un ou plusieurs nucléides isomères, par exemple ceux listés dans le tableau 1. Ces rayons gamma intriqués pro-

viennent de réactions nucléaires telles que la désintégration du cobalt 60 ou du phénomène de Bremsstrahlung dans les accélérateurs de particules. L'intrication des rayons gamma produits est transférée aux nucléides isomères. Les produits radioactifs obtenus ont alors une demi-vie variable due aux liaisons entre nucléides intriqués.

5 Il est connu des hommes de l'art que la désexcitation de l'isomère peut être accélérée par irradiation X ou gamma (parfois appelée stimulation X ou gamma). Par contre, dans cette invention la demi-vie de l'isomère produit se modifie avec le temps sans l'intervention d'une irradiation. De surcroît, la demi-vie obtenue dans le cadre de l'invention, varie dans le temps en étant plus courte au début de la vie de l'isomère, et  
10 plus longue par la suite comme le montre la figure 5 dans l'exemple de l'indium 115<sup>m</sup>.

Dans cette invention, les échantillons d'isomères excités ne sont pas stimulés. La variation de la demi-vie résulte du procédé d'intrication des noyaux atomiques.

Cette invention résout un problème technique en fournissant un corps radioactif avec une demi-vie variable sans stimulation et adaptable pour une application donnée. En  
15 général le produit isomère excité obtenu par le procédé est caractérisé par une demi-vie initiale comprise entre 10% et 100% de la demi-vie théorique selon le niveau et la nature de l'intrication.

La probabilité de désintégration ou de désexcitation d'un corps radioactif n'est pas modifiée par un changement de son état physique ou chimique. En conséquence, les  
20 échantillons excités avec les techniques décrites dans cette invention peuvent être transformés par fusion, vaporisation, dissolution ou combinaison chimique après irradiation sans modification de leurs propriétés nucléaires.

Plusieurs isotopes peuvent exister naturellement ou être incorporés artificiellement dans les échantillons. Ces échantillons peuvent alors être des alliages ou des mélanges de  
25 plusieurs isotopes ayant un état métastable. Dans ce cas, la demi-vie de chaque isotope excité selon l'invention peut être mesurée simultanément avec un spectrographe gamma connu de l'homme de l'art.

Le procédé selon l'invention consiste à irradier, à l'aide de rayons gamma intriqués, un échantillon d'un élément ou de plusieurs éléments possédant un ou des états métastables d'une durée de demi-vie allant d'une microseconde à 50 ans. La source  
30 d'irradiation peut être soit un isotope radioactif qui produit des rayons gamma intriqués, soit un accélérateur de particules, telles que des électrons, des particules alpha ou des protons, qui par effet de Bremstrahlung produisent des rayons gamma intriqués.

Dans le cas de la source radioactive, les rayons gamma doivent être émis en cascade par le même noyau pour être intriqués, et l'énergie des rayons gamma doit être supérieure au seuil d'excitation de l'isomère choisi. Par exemple, une émission en cascade est fournie par le cobalt 60, comme le montre la figure 2. Les rayons gamma intriqués doivent avoir une énergie suffisante pour provoquer une transition isomérique inverse de l'isomère irradié, c'est à dire faire passer le noyau de l'isomère de son état fondamental à son état métastable. Dans le cas de l'indium 115, par exemple, l'énergie nécessaire est de 1080 keV, condition qui est remplie par les deux rayons gamma du cobalt 60. On voit sur la figure 2 que l'un des gamma a une énergie de 1173 keV avec 99,90% chance de se produire, et l'autre 1332 keV avec 99,98% chance de se manifester. Une cascade se produit donc, car les deux gamma sont émis à 0,713 picoseconde ( $10^{-12}$  s) d'intervalle en moyenne.

Dans le cas d'une irradiation par les rayons gamma de Bremstrahlung d'un accélérateur de particules, par exemple d'électrons, l'énergie des gamma doit à nouveau être supérieure au seuil d'excitation de l'isomère choisi.

Par exemple, un accélérateur linéaire compact peut émettre un rayonnement gamma très focalisé avec un spectre d'énergie gamma de 0 à 6 MeV. Ce spectre est reproduit sur la figure 3. L'énergie de tous les électrons avant de rencontrer la cible de tungstène est de 6 MeV. En conséquence, chaque électron émet en moyenne quatre gamma de 1,5 MeV (1500 keV) comme le montre la figure 3 dans une très rapide succession assimilable à une cascade. Les rayons gamma émis sont donc intriqués par deux, trois ou quatre. La cascade de gamma ainsi obtenue avec l'accélérateur linéaire compact est, comme le montre l'expérience, plus efficace pour modifier la demi-vie que la source de cobalt 60.

#### **Description sommaire des dessins et tableau :**

La figure 1 représente les niveaux énergétiques du noyau d'Indium 115 lors de son excitation à l'état métastable. La demi-vie de cet état est normalement de 4,486 heures, l'énergie du rayon gamma émis est de 336,24 keV (« Table of Isotopes », CD-ROM, 8th edition, Version 1.0, Richard B. Firestone, Laurence Berkeley National Laboratory, University of California).

La figure 2 représente la transition du noyau de Cobalt 60 vers le Nickel 60. La cascade qui a 99,9 chances de se produire émet deux rayons gamma intriqués respectivement à

1173,237 keV et 1332,501 keV (« Table of Isotopes », CD-ROM, 8th edition, Version 1.0, Richard B. Firestone, Laurence Berkeley National Laboratory, University of California).

5 La figure 3 représente les spectres d'énergie des électrons dans l'accélérateur et des rayons gamma émis par la cible. L'énergie maximale est de 1,5 MeV (Sameer S. A. Natto, Journal of Australian Physical & Engineering Sciences in Medecine, 26, 3, pp 78-82,2003).

La figure 4 illustre un mode de mise en oeuvre de l'invention avec une source radioactive et une pluralité d'échantillons.

10 La figure 5 représente une variation typique de la demi-vie d'un échantillon irradié selon l'invention avec une source radioactive.

La figure 6 illustre un mode de mise en oeuvre de l'invention avec un accélérateur de particules et une pluralité d'échantillons.

15 La figure 7 représente une variation typique de la demi-vie d'un échantillon irradié selon l'invention avec un accélérateur de particules.

Le tableau 1 est une liste des principaux noyaux nucléaires ayant un état métastable avec leur symbole, abondance, demi-vie et émission de rayons gamma.

### **Manières de réaliser l'invention :**

20 Des manières de réaliser l'invention sont décrites ci-dessous. Cependant il est précisé que la présente invention peut être réalisée de différentes façons. Ainsi, les détails spécifiques mentionnés ci-dessous ne doivent pas être compris comme limitant la réalisation, mais plutôt comme une base descriptive pour supporter les revendications et pour apprendre à l'homme du métier l'usage de l'invention présente, dans pratiquement la totalité des systèmes, structures ou manières, détaillés et appropriés.

25 Selon un mode particulier de l'invention, les échantillons à irradier sont placés sur un plateau (3) qui présente échantillons (5) en succession devant un piston (7) qui les introduit en face d'une source radioactive (1) par l'orifice (4) comme le montre la figure 4. La source est placée dans un épais blindage de plomb et d'acier (2). Un axe (6)  
30 connecte le plateau à un moteur (10) commandé par une minuterie (11). Le temps d'irradiation est réglé pour chaque échantillon à l'aide d'une minuterie (9) qui actionne une vanne pneumatique (8) pour obtenir la réponse optimale d'activation.

Dans le cas, par exemple, de l'indium 115, une irradiation de 20 heures avec une

source de 111000 GBq (3000 Ci) de cobalt 60 produit l'isomère d'indium  $\text{In}115^m$  avec une demi-vie initiale de 242 minutes au lieu de 268 qui est la demi-vie de l'isomère normal, soit une diminution de 10%. Cette diminution peut être modifiée en variant le temps d'irradiation. Contrairement à l'isomère normal, à partir de 1500 minutes de temps écoulé, la demi-vie dépasse la demi-vie normale soit 268 minutes pour atteindre 360 minutes après 3000 minutes écoulées. L'échantillon reste donc légèrement radioactif très longtemps. La figure 5 montre schématiquement l'évolution de la demi-vie pour un échantillon d'indium irradié,  $\text{In} 115^m$ , dans les conditions précédentes.

Selon un autre mode de réalisation de l'invention, schématisé sur la figure 6, les échantillons (14) sont placés sur un plateau tournant (13). Ce plateau est supporté par un axe (15) et connecté à un moteur (16), lui-même commandé par une minuterie (17). Les échantillons sont présentés en séquence devant le faisceau de rayons X d'un accélérateur linéaire compact (12) par exemple. Un « fantôme » (18) rempli d'eau arrête les rayons gamma non absorbés. En général les accélérateurs ne peuvent pas fonctionner en permanence. Un certain nombre d'unités de temps d'irradiation, par exemple de 5 minutes, est appliqué à chaque échantillon selon la demi-vie initiale désirée à l'aide d'une minuterie (19).

L'accélérateur émet un rayonnement focalisé, contrairement à la source de cobalt 60. De plus, avec les rayons gamma émis par la cible d'un accélérateur, jusqu'à quatre gamma avec une énergie suffisante pour activer des noyaux comme les noyaux d'indium 115 sont produit en cascade. Ce rayonnement est donc plus efficace et un court temps d'irradiation est généralement suffisant. La figure 7 représente l'évolution schématique de la demi-vie d'un échantillon d'indium 115 irradié à l'aide d'un accélérateur linéaire compact pendant 20 minutes. La demi-vie initiale est de 130 minutes comparée à 268 minutes pour  $\text{In} 115^m$  normal, soit une diminution de 50%. A nouveau la demi-vie normale est atteinte après 1500 minutes écoulées et croît ensuite à 400 minutes quand le temps atteint 3000 minutes écoulées.

Les appareillages décrits précédemment sont des exemples de réalisation. D'autres moyens pour présenter les échantillons à l'irradiation peuvent être employés sans sortir du cadre de l'invention.

Les échantillons à irradier sont des solides en feuille ou en poudre, des liquides ou des gaz (cas du Xénon par exemple) qui contiennent des proportions d'un ou de plusieurs isotopes du tableau 1 et / ou des isotopes radioactifs ayant un état métastable. Les

échantillons peuvent être aussi des alliages, des mélanges ou des composés chimiques incorporant des proportions d'un ou de plusieurs isotopes du tableau 1 et / ou des isotopes radioactifs ayant un état métastable. Les échantillons peuvent également être transformés physiquement ou chimiquement après irradiation. Par exemple un échantillon sous forme de poudre ou de gaz peut être incorporé dans des molécules porteuses injectables.

Les mesures de demi-vie peuvent être effectuées avec les instruments classiques de l'homme de l'art. Les spectroscopes gamma utilisés présentement contiennent des milliers de canaux pour mesurer simultanément la réponse de centaines d'isotopes radioactifs ou excités.

Un instrument courant est le détecteur à cristaux de germanium fonctionnant à basse température. Afin de minimiser les effets des rayons cosmiques, du radon et des parasites ambiants, les échantillons peuvent être placés dans un conteneur avec des parois de cuivre, plomb et acier. Un analyseur multi-canal se cale sur la ou les radiations caractéristiques du ou des isomères choisis. Par exemple, dans le cas de l'indium  $^{115m}$ , les rayons gamma sont comptés dans la raie 336 keV ; dans le cas de Hafnium 179, de 25 jours de demi-vie, de nombreuses raies sont détectables dont les principales sont 453, 409, 362, 315, 268 et 122 keV. Ces raies sont émises en cascade à des picosecondes d'intervalle et sont facilement détectées par les spectrographes à cristaux de germanium. Il est également possible que les progrès de la technique permettent de mesurer les raies sans un conteneur spécial.

#### **Possibilités d'applications industrielles :**

Différentes applications industrielles ou médicales sont possibles. Une réaction chimique par exemple peut demander une dose forte de rayonnement au début (supérieure à la dose de rayonnement des mêmes isotopes isomères non intriqués) qui est suivie par une dose plus faible et durant longtemps. Il en est de même pour un traitement médical qui demande une évolution des doses dans le temps. L'utilisation de plusieurs isotopes dans le même échantillon est utilisée pour avoir simultanément des rayons gamma de différentes énergies lors de la désexcitation des isotopes isomères excités.

Nucléide	Symbole	Abondance %	Demi-vie	Gamma keV
Niobium	93Nb41	100	16.3 a	31.8
Cadmium	111Cd48	12.8	48.54 m	396.2
Cadmium	113Cd48	12.2	14.1 a	263.5
Césium	135Ce	-	53 m	846/786
Indium	115In49	95.7	4.48 h	336.2
Tin	117Sn50	7.7	13.6 a	314.6
Tin	119Sn50	8.6	293 j	60.5
Tellure	125Te52	7.1	57.4 j	144.8
Xénon	129Xe54	26.5	8.8 j	238.1
Xénon	131Xe54	21.2	11.8 j	163.9
Hafnium	178Hf72	27.3	31 a	574/..../93
Hafnium	179Hf72	13.6	25 j	453/..../122
Iridium	193Ir77	62.7	10.5 j	80.2
Platinum	195Pt78	33.8	4 j	259.3

m: minutes, h: heures, j: jours, a: années.

**TABLEAU 1**



## REVENDICATIONS

1) Procédé pour modifier la probabilité de désexcitation, donc la demi-vie, des nucléides isomères, dans lequel:

- on prépare un échantillon contenant au moins un nucléide isomère ayant un état métastable par irradiation au moyen, soit d'une source de rayons gamma émis en cascade, soit d'un générateur de rayons gamma provenant du Bremstrahlung de particules accélérées, avec une énergie supérieure au seuil d'excitation dudit nucléide isomère pour exciter ledit nucléide isomère à son état métastable,

caractérisé:

- en ce que la demi-vie initiale d'au moins un nucléide isomère excité de l'échantillon préparé précédemment est inférieure à la demi-vie théorique dudit nucléide, et en ce que cette demi-vie initiale varie avec le temps et la puissance de la source d'irradiation,

- en ce que l'on utilise le rayonnement gamma de demi-vie instantanée variable d'au moins un nucléide isomère excité, au cours de sa désexcitation naturelle, et en ce que la valeur de la demi-vie varie de la valeur de la demi-vie initiale à la valeur de la demi-vie théorique dudit nucléide, puis augmente au delà de cette valeur de ladite demi-vie théorique.

2) Procédé selon la revendication 1 caractérisé en ce que l'on utilise des échantillons contenant au moins un nucléide isomère ayant un état métastable, par exemple: Niobium ( $^{93}\text{Nb}41\text{m}$ ), Cadmium ( $^{111}\text{Cd}48\text{m}$ ), Cadmium ( $^{113}\text{Cd}48\text{m}$ ), Césium ( $^{135}\text{Ce}55\text{m}$ ), Indium ( $^{115}\text{In}49\text{m}$ ), Etain ( $^{117}\text{Sn}50\text{m}$ ), Etain ( $^{119}\text{Sn}50\text{m}$ ), Tellure ( $^{125}\text{Te}52\text{m}$ ), Xénon ( $^{129}\text{Xe}54\text{m}$ ), Xénon ( $^{131}\text{Xe}54\text{m}$ ), Hafnium ( $^{178}\text{Hf}72\text{m}$ ), Hafnium ( $^{179}\text{Hf}72\text{m}$ ), Iridium ( $^{193}\text{Ir}77\text{m}$ ), Platine ( $^{195}\text{Pt}78\text{m}$ ), et des isotopes radioactifs.

3) Procédé selon l'une des revendications 1 ou 2 caractérisé en ce que l'on utilise des échantillons contenant plusieurs nucléides isomères excités dont la réponse gamma de chacun d'eux est mesurée simultanément.

4) Procédé selon l'une quelconque des revendications 1, 2 ou 3 caractérisé en ce que l'on utilise des échantillons contenant au moins un nucléide isomère excité dont la ré-

ponse gamma est composée d'une pluralité de raies mesurées simultanément.

5) Procédé selon l'une quelconque des revendications 1, 2, 3 ou 4 caractérisé en ce que la valeur initiale mesurée de la demi-vie initiale d'au moins un nucléide isomère excitée est comprise entre 10% et 100% de la valeur théorique.

5 6) Procédé selon l'une quelconque des revendications 1, 2, 3, 4 ou 5 caractérisé en ce que l'on utilise des échantillons sous différentes formes physiques ou sous différentes formes chimiques.

7) Procédé selon l'une quelconque des revendications 1, 2, 3, 4, 5 ou 6 caractérisés en ce que l'on utilise un échantillon sous la forme d'une solution.

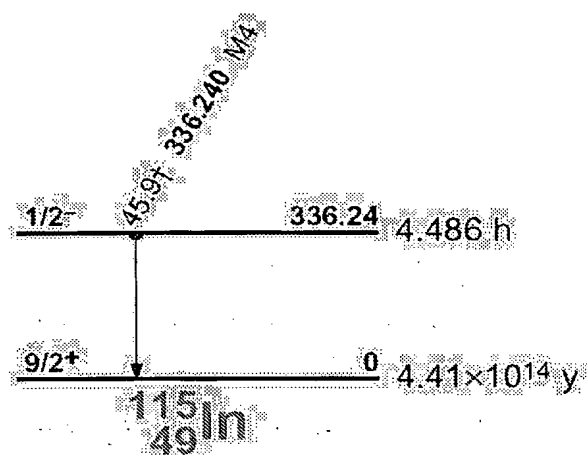
10 8) Procédé selon l'une quelconque des revendications 1, 2, 3, 4, 5, 6 ou 7 caractérisé en ce que l'on utilise un échantillon ayant subi une transformation physique ou une transformation chimique après irradiation.

9) Dispositif de mise en œuvre du procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 8 caractérisé en ce qu'il comprend :

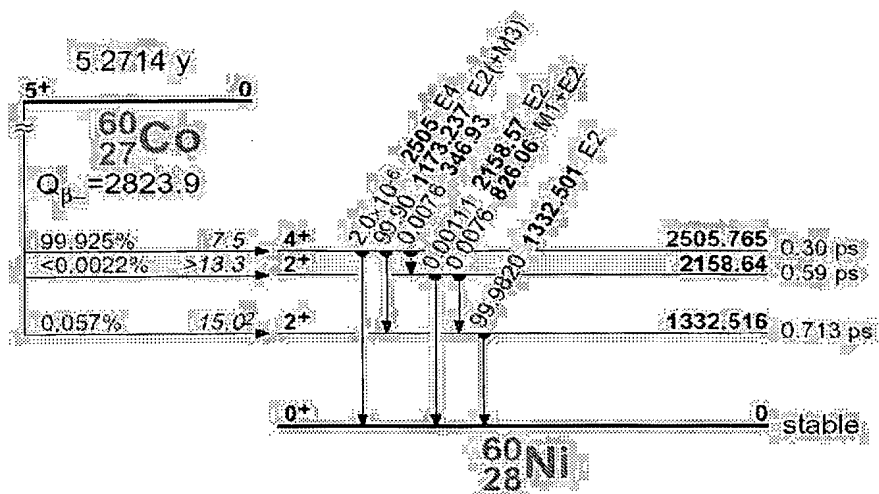
- 15 - un appareillage d'excitation irradiant un échantillon contenant au moins un nucléide isomère ayant un état métastable au moyen soit d'une source de rayons gamma émis en cascade, soit d'un générateur de rayons gamma provenant du Bremstrahlung de particules accélérées, avec une énergie supérieure au seuil d'excitation dudit nucléide isomère pour l'exciter à son état métastable,
- 20 - un appareillage contrôlant la durée d'irradiation de chaque échantillon en fonction de la demi-vie initiale requise.

10) Utilisation du procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 8 pour fournir une faible dose de rayonnement pendant longtemps à partir d'une forte dose initiale de rayonnement.

**1 / 4**



**FIG. 1**



**FIG.2**

2 / 4

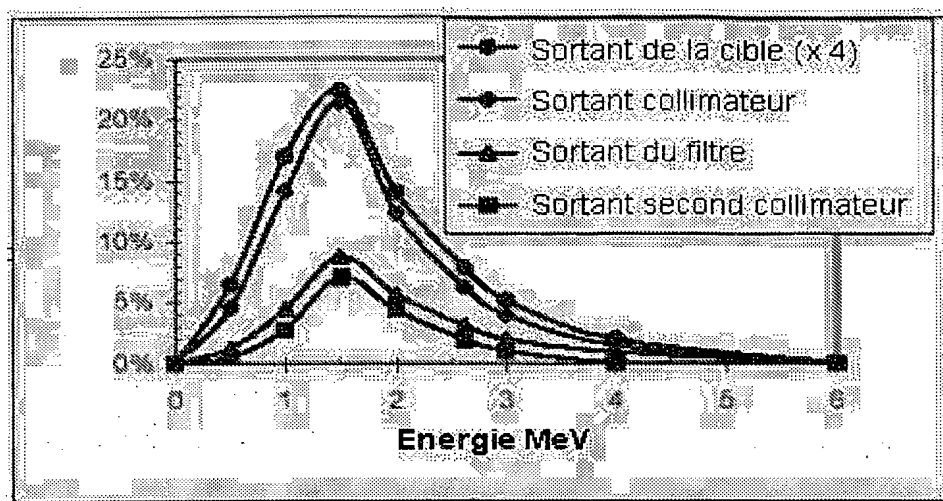


FIG.3

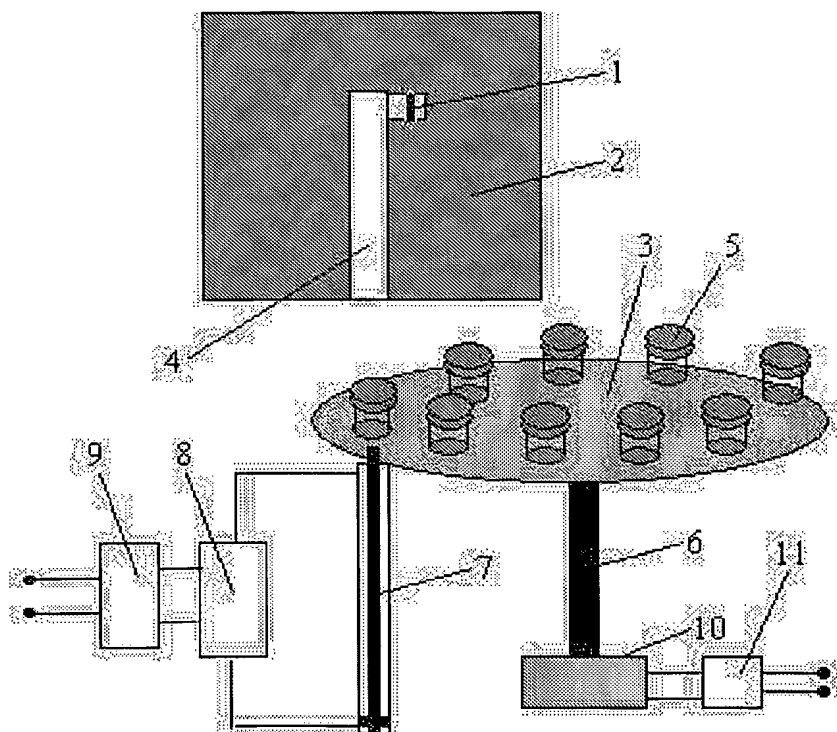


FIG.4

3 / 4

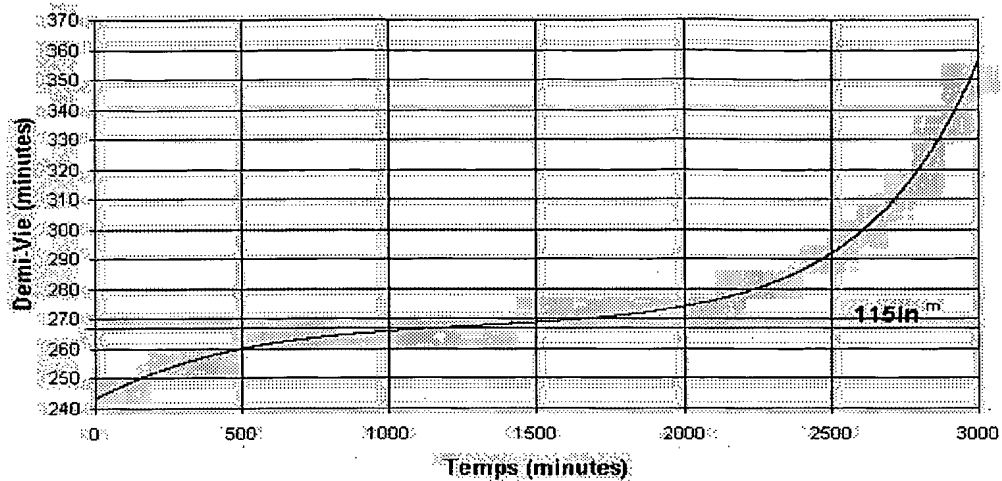


FIG.5

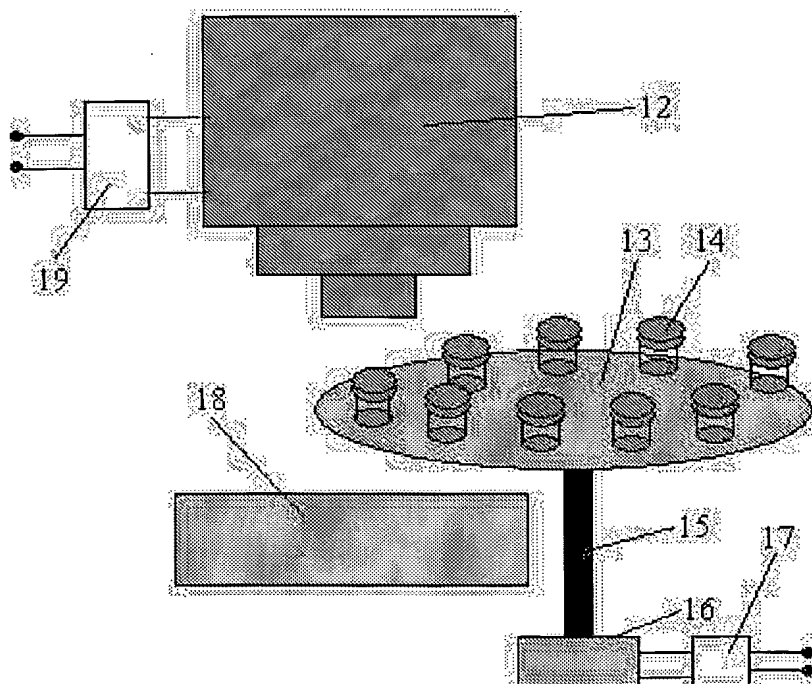


FIG.6

4 / 4

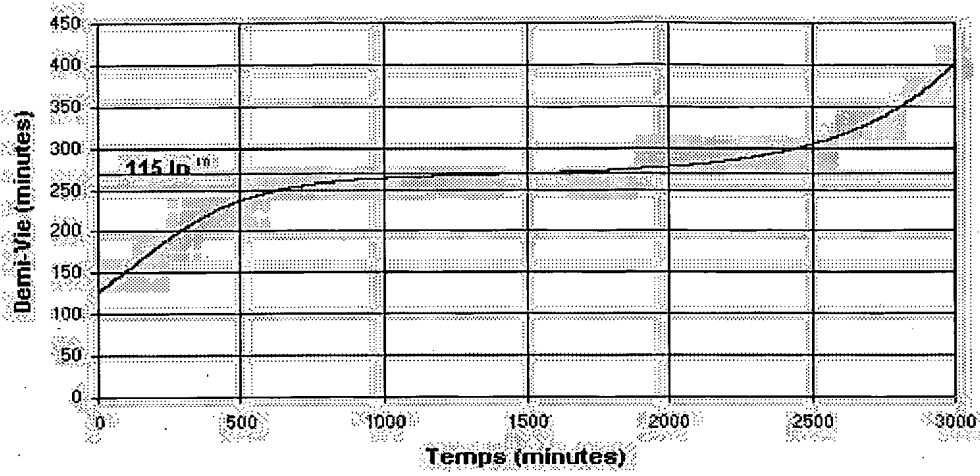


FIG.7